

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19)世界知的所有権機関
国際事務局



(43)国際公開日
2004年12月29日 (29.12.2004)

PCT

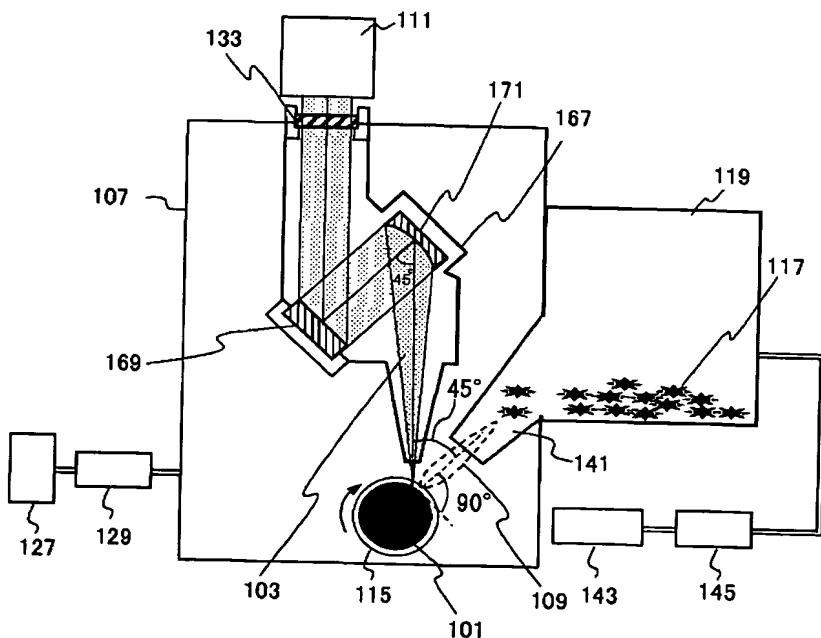
(10)国際公開番号
WO 2004/113225 A1

- (51)国際特許分類⁷: C01B 31/02
(21)国際出願番号: PCT/JP2004/008743
(22)国際出願日: 2004年6月22日 (22.06.2004)
(25)国際出願の言語: 日本語
(26)国際公開の言語: 日本語
(30)優先権データ:
特願2003-179047 2003年6月24日 (24.06.2003) JP
(71)出願人(米国を除く全ての指定国について): 日本電気
株式会社 (NEC CORPORATION) [JP/JP]; 〒1088001
東京都港区芝五丁目7番1号 Tokyo (JP).
(72)発明者; および
(75)発明者/出願人(米国についてのみ): 篠文史 (AZAMI, Takeshi) [JP/JP]; 〒1088001 東京都港区芝五丁目7番
1号日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 吉武 慕 (YOSHITAKE, Tsutomu) [JP/JP]; 〒1088001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 久保 佳実 (KUBO, Yoshimi) [JP/JP]; 〒1088001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 糟屋 大介 (KASUYA, Daisuke) [JP/JP]; 〒1088001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 飯島 澄男 (IJIMA, Sumio) [JP/JP]; 〒1088001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 湯田坂 雅子 (YUDASAKA, Masako) [JP/JP]; 〒1088001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP).
(74)代理人: 速水 進治 (HAYAMI, Shinji); 〒1500021 東京都渋谷区恵比寿西2-17-16 代官山TKビル1階
Tokyo (JP).
(81)指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR,

[総葉有]

(54) Title: NANOCARBON-PRODUCING DEVICE

(54)発明の名称: ナノカーボンの製造装置



176

(57) Abstract: In a nanocarbon-producing device (173), a plane mirror (169) and a parabolic mirror (171) are arranged in a production chamber (107). Light, emitted from a laser light source (111), transmitted through a ZnSe window (133) is reflected at the plane mirror (169) and the parabolic mirror (171), collected at the parabolic mirror (171), and then irradiated onto the surface of a graphite rod (101).

[総葉有]

WO 2004/113225 A1



BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG,

(57) 要約: ナノカーボン製造装置(173)において、製造チャンバー(107)内に平面鏡(169)および放物面鏡(171)を設ける。ZnSeウインドウ(133)を透過したレーザー光源(111)からの出射光を、平面鏡(169)および放物面鏡(171)において反射させ、さらに放物面鏡(171)において集光した後、グラファイトロッド(101)の表面に照射する。

明細書

ナノカーボンの製造装置

技術分野

[0001] 本発明は、ナノカーボンの製造装置に関する。

背景技術

[0002] 近年、ナノカーボンの工学的応用が盛んに検討されている。ナノカーボンとは、カーボンナノチューブやカーボンナノホーン等に代表される、ナノスケールの微細構造を有する炭素物質のことをいう。このうち、カーボンナノホーンは、グラファイトのシートが円筒状に丸まったカーボンナノチューブの一端が円錐形状となった管状体の構造を有している。カーボンナノホーンは、通常、各々の円錐部間に働くファンデルワールス力によって、チューブを中心にし円錐部が角(ホーン)のように表面に突き出る形態で集合し、カーボンナノホーン集合体を形成する。カーボンナノホーン集合体は、その特異な性質から、様々な技術分野への応用が期待される。

[0003] カーボンナノホーン集合体は、不活性ガス雰囲気中で原料の炭素物質(以下「グラファイターゲット」とも呼ぶ。)に対してレーザー光を照射するレーザー蒸発法によって製造されることが報告されている(特許文献1)。特許文献1には、レーザー光として CO_2 ガスレーザーが例示されている。

[0004] ところで、 CO_2 ガスレーザーの波長は $10.6 \mu\text{m}$ 程度であり、 CO_2 ガスレーザーを透過する材料としてZnSe等が好適に用いられる(特許文献2)。このため、 CO_2 ガスレーザーを用いてカーボンナノホーン集合体を製造する際に、ZnSeレンズを用いることにより、レーザー光をグラファイターゲット表面に集光可能であると考えられる。

[0005] 特許文献1:特開2001-64004号公報

特許文献2:特開2001-51191号公報

[0006] 発明の開示

[0007] そこで、ZnSe製の窓(以下「レーザー光窓」とも呼ぶ。)を製造用チャンバーに設けてカーボンナノホーン集合体を製造する方法について本発明が検討した。すると、レーザー光窓の使用時間が長くなるにつれて、回収されるすす状物質中のカーボンナ

ノホーン集合体の重量比(以下「収率」と呼ぶ。)が低下することがわかった。また、レーザー光窓の寿命が比較的短く、場合によっては破損することがあった。その結果、装置の維持に費用がかかったり、装置自体の寿命が短くなったりすることがわかった。また、チャンバ外に設けたZnSeレンズについても寿命が比較的短かった。

- [0008] そこで、カーボンナノホーン集合体の収率が低下する原因やレーザー光窓またはレンズの寿命が短い原因について検討を行った。その結果、グラファイトターゲットにレーザー光を照射すると、グラファイトターゲットから発生した炭素蒸気から生じるすす状物質が、レーザー光窓の表面に付着することがこれらの要因である可能性があることが見出された。また、レーザー光窓またはレンズの表面にすす状物質が付着すると、付着した部分で光の吸収が生じることにより、レーザー光窓やレンズが加熱されることも明らかになった。
- [0009] このような場合、熱レンズ効果により光路がずれる可能性がある。光路のずれは、CO₂ガスレーザーがグラファイトターゲットの表面に照射される位置がずれたり、表面に照射される光のパワー密度が変化の要因となりうる。このことが、装置の使用時間の増加に伴う収率低下の原因であると推察された。また、レーザー光窓やレンズの加熱は、破損等の要因になると推察された。このため、カーボンナノホーン集合体の収率を低下させずに製造する技術が必要とされていた。また、装置寿命を長期化するために、従来とは異なる技術が必要とされる。
- [0010] 本発明は上記事情に鑑みてなされたものであり、その目的は、ナノカーボンを高い効率で安定的に得る技術を提供することにある。また、本発明の別の目的は、ナノカーボンの製造装置の寿命を長期化する技術を提供することにある。
- [0011] 本発明者は、ナノカーボンを高い効率で得るための手法について鋭意検討した。その結果、光源からの出射光を光学部材を用いてグラファイトターゲット表面に照射する際に、光学部材をすす状物質の付着から遮蔽することが重要であることを見出し、本発明に到達した。また、光源からの出射光を直接グラファイトターゲット表面に照射せず、反射させて光路を変更した後グラファイトターゲットに照射することにより、光学部材がすす状物質の付着から保護されることを見出し、本発明に到達した。
- [0012] 本発明によれば、グラファイトターゲットと、前記グラファイトターゲットを収容する室

と、前記室の一部に設けられた窓部と、前記窓部を介して前記グラファイトターゲットの表面に光を照射する光源と、前記光の照射により前記グラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気より発生するナノカーボンを回収する回収部と、前記窓部と前記グラファイトターゲットとの間に介在する遮蔽部材と、を備えることを特徴とするナノカーボンの製造装置が提供される。

- [0013] 本発明においては、窓部とグラファイトターゲットとの間に遮蔽部材が設けられている。前述のように、光源から出射した光が、窓部を透過後、直接グラファイトターゲットの表面に照射される構成とした場合、グラファイトターゲット表面より発生した炭素蒸気から得られるすす状物質が、窓部側に戻る方向にも飛散するため、窓部の表面にすす状物質が付着しやすかつた。このため、ZnSe製の光学部材を用いた場合、光学部材が加熱されやすかつた。
- [0014] これに対し、本発明の構成においては、窓部がグラファイトターゲットの表面から遮蔽された構成となっている。このような構成とすれば、グラファイトターゲット表面から発生したすす状物質が窓部側に飛散した場合にも、遮蔽部材によって遮蔽されるため、すす状物質が窓部に向かって移動し、その表面に付着することが抑制される。このため、グラファイトターゲットに照射される光のパワー密度を安定化し、所望の性状のナノカーボンを高い收率で安定的に製造することができる。
- [0015] なお、本発明において、遮蔽部材は、グラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気から窓部を覆うように配置されている。遮蔽部材は、光源からの出射光がグラファイトターゲット表面に到達するようにしつつ、グラファイトターゲットの表面より発生した炭素蒸気から得られるすす状物質の付着を妨げるよう窓部を覆う構成とすることができる。
- [0016] また、本発明において、室は、グラファイトターゲットを収容する。ただし、グラファイトターゲットの全体を収容しなくてもよい。グラファイトターゲットの一部を収容していてもよい。
- [0017] また、本発明において、窓部は、光源からの出射光を透過させる光学部材であり、たとえばレーザー光窓またはレンズ等とすることができる。また、窓部は、その一部を室内に露出して配置されている。窓部は、光源の一部としてその出射端面等に配置

されていてもよいし、光源とは独立した部材としてグラファイトターゲットが収容される室の壁面等に配置されていてもよい。

- [0018] また、本明細書において、「パワー密度」とは、グラファイトターゲット表面に実際に照射される光のパワー密度、すなわちグラファイトターゲット表面の光照射部位におけるパワー密度を指すものとする。
- [0019] 本発明の製造装置において、前記窓部と前記遮蔽部材との間に、前記光を前記グラファイトターゲットの前記表面に導くための光学部材を備えてよい。こうすることにより、光をグラファイトターゲットの表面に確実に照射することができる。よって、ナノカーボンを安定的に製造することができる。また、本発明においては、光学部材とグラファイトターゲットの間に遮蔽部材が設けられているため、すす状物質が、回収部に回収されずに窓部方向に飛散し、光学部材の表面に付着するのを抑制することができる。このため、熱レンズ効果によるグラファイトターゲット表面におけるレーザー照射位置のずれや、表面における光のパワー密度のぶれを抑制することができる。よって、所望の性状のナノカーボンを安定的に製造し続けることができる。従って、ナノカーボンの収率を向上することができる。また、光学部材の加熱が抑制されるため、光学部材の破損を抑制し、光学部材を長寿命化することができる。また、光学部材の交換による装置の維持費の増加を抑制することができる。よって、耐久性および生産性にすぐれた装置構成を容易に実現することができる。
- [0020] 本発明によれば、グラファイトターゲットと、前記グラファイトターゲットを収容する室と、前記室の一部に設けられた窓部と、前記窓部を介して前記グラファイトターゲットの表面に光を照射する光源と、前記光の照射により前記グラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気より発生するナノカーボンを回収する回収部と、前記窓を透過した透過光を反射させ、前記グラファイトターゲットの表面に導くための反射部材と、を備えることを特徴とするナノカーボンの製造装置が提供される。
- [0021] また、本発明のナノカーボンの製造装置において、前記光学部材が反射部材を含んでもよい。
- [0022] こうすることにより、窓部を透過した光の光路を変えた後、グラファイトターゲットの表面に照射することができる。よって、窓部へのすす状物質の付着を確実に抑制するこ

とができる。

- [0023] 本発明において、反射部材は、たとえばその表面を金属とすることができます。こうすることにより、表面の放熱性が好適に確保される。よって、表面にすす状物質等が付着しても過度の温度上昇を抑制することができる。本発明において、反射部材を冷却するための冷却機構をさらに備えてもよい。こうすれば、より一層確実に反射部材を冷却することができる。このため、反射部材の過加熱を抑制し、その寿命を向上させることができる。また、ナノカーボンを安定的に製造することができる。また、本発明において、反射部材に付着したすす状物質を除去するための掃塵機構をさらに設けてもよい。こうすれば、所定のタイミングですす状物質を除去しながらナノカーボンを製造することができる。このため、ナノカーボンの収率をさらに向上させることができる。
- [0024] 本発明のナノカーボンの製造装置において、前記反射部材と前記グラファイトターゲットとの間に介在する遮蔽部材をさらに備えてもよい。
- [0025] こうすることにより、窓部または光学部材をすす状物質の付着からより一層確実に保護することができる。このため、ナノカーボンの収率の低下を抑制することができる。また、光学部材の寿命を長期化することができる。
- [0026] 本発明のナノカーボンの製造装置において、前記反射部材が集光作用を有してもよい。こうすることにより、グラファイトターゲットの所定の位置に、光を確実に集光することができる。このため、ナノカーボンを安定的に製造することができる。また、集光するための光学部材を設けることなくグラファイトターゲットの表面に光を集光することができるため、簡易な構成で効率よくナノカーボンを製造することができる。なお、集光作用を有する反射部材は、単一の部材から構成されていてもよいし、複数の部材の組み合わせにより構成されていてもよい。
- [0027] たとえば、反射部材は凹面鏡とすることができる。また、本発明のナノカーボンの製造装置において、前記反射部材が放物面鏡であってもよい。こうすれば、凹面鏡に光を反射させた反射光をその焦点に確実に集光することができる。よって、グラファイトターゲットの表面にさらに確実に反射光を集光させることができます。したがって、さらに安定にナノカーボンを製造することができる。
- [0028] 本発明のナノカーボンの製造装置において、円筒状の前記グラファイトターゲットを

保持するとともに該グラファイトターゲットを中心軸周りに回転させるターゲット保持手段を備えることができる。こうすることにより、ナノカーボンを連続的に製造することができる。よって、ナノカーボンの収率を向上させることができる。

- [0029] 本発明のナノカーボンの製造装置において、前記ナノカーボンがカーボンナノホーン集合体であってもよい。
- [0030] こうすることにより、カーボンナノホーン集合体を高い収率で安定的に製造することができる。
- [0031] 本発明のナノカーボンの製造装置において、前記光の進行方向に沿った気流を前記光源側から前記グラファイトターゲット側に向かって生じさせる吸気部をさらに有してもよい。こうすることにより、すす状物質がグラファイトターゲット側から光源側に向かって移動し、窓部または光学部材に付着してしまうのをより一層確実に抑制することができる。このため、装置の寿命をより一層確実に長期化することができる。また、ナノカーボンをより一層安定的に生産することができる。
- [0032] 以上、本発明の構成について説明したが、これらの構成を任意に組み合わせたものも本発明の態様として有効である。また、本発明の表現を他のカテゴリーに変換したものもまた本発明の態様として有効である。

以上説明したように本発明によれば、窓部とグラファイトターゲットとの間に遮蔽部材を設けることにより、ナノカーボンを高収率で製造することができる。また、本発明によれば、ナノカーボンの製造装置の寿命を長期化することができる。

図面の簡単な説明

- [0033] 上述した目的、およびその他の目的、特徴および利点は、以下に述べる好適な実施の形態、およびそれに付随する以下の図面によってさらに明らかになる。
- [0034] [図1]実施の形態に係るナノカーボン製造装置の構成を示す図である。
[図2]実施の形態に係るナノカーボン製造装置の構成を示す図である。
[図3]実施の形態に係るナノカーボン製造装置の構成を示す図である。
[図4]実施の形態に係るナノカーボン製造装置の構成を示す図である。
[図5]実施の形態に係るナノカーボン製造装置の構成を示す図である。
[図6]実施の形態に係るナノカーボン製造装置の構成を示す図である。

[図7]実施の形態に係るナノカーボン製造装置の構成を示す図である。

[図8]実施例に係るナノカーボン製造装置の構成を示す図である。

[図9]実施例に係るナノカーボン製造装置の構成を示す図である。

[図10]実施例に係るナノカーボン製造装置の構成を示す図である。

[図11]実施例の各装置におけるZnSeウインドウの破損時間を示す図である。

[図12]実施例における製造時間とカーボンナノホーン集合体の収率との関係を示す図である。

発明を実施するための最良の形態

[0035] 以下、本発明の好ましい実施の形態を図面を参照して詳細に説明する。

[0036] (第一の実施形態)

本実施形態は、グラファイトターゲットの表面に照射する光の光路周辺をカバーで覆ったナノカーボン製造装置に関する。図1は、本実施形態に係るナノカーボンの製造装置の構成の一例を示す断面図である。なお、本明細書において、図1および他の製造装置の説明に用いる図は概略図であり、各構成部材の大きさは実際の寸法比に必ずしも対応していない。

[0037] 図1のナノカーボン製造装置125は、製造チャンバー107、ナノカーボン回収チャンバー119、およびこれらを接続する搬送管141を備える。また、図1の製造装置は、レーザー光103を出射するレーザー光源111、ZnSe平凸レンズ131、ZnSeウインドウ133、カバー167、およびグラファイトロッド101を保持し、その中心軸周りに回転させる回転装置115を備える。さらに、ナノカーボン製造装置125は、不活性ガス供給部127、流量計129、真空ポンプ143、および圧力計145を備える。

[0038] ナノカーボン製造装置125において、レーザー光源111からの出射光は、ZnSe平凸レンズ131にて集光され、製造チャンバー107の壁面に設けられたZnSeウインドウ133を通じて製造チャンバー107内のグラファイトロッド101に照射される。このとき、レーザー光103は、その光路に沿って設けられたカバー167内を通過する。

[0039] グラファイトロッド101は、レーザー光103照射のターゲットとなる固体炭素単体物質として用いられる。グラファイトロッド101は回転装置115に固定されており、中心軸周りに回転可能である。たとえば、グラファイトロッド101の表面においてレーザー光1

03が照射された箇所が、レーザー光103の照射方向から遠ざかるようにグラファイトロッド101を回転させることができる。具体的には、図1において、グラファイトロッド101を中心軸に対して右回りに回転させることができる。こうすれば、戻り光の発生をより一層確実に抑制することができる。

- [0040] そして、レーザー光103の照射に供する新たな照射面を安定的に提供しつつ、カーボンナノホーン集合体117を確実に回収することができる。グラファイトロッド101を回転装置115に固定することにより、中心軸周りに回転させることができるのである。またグラファイトロッド101はたとえば中心軸に沿った方向に位置移動可能な構成とすることができる。
- [0041] 搬送管141は、製造チャンバー107およびナノカーボン回収チャンバー119に連通し、これらを接続する。グラファイトロッド101の側面にレーザー光源111からレーザー光103が照射され、その際のプルーム109の発生方向に搬送管141を介してナノカーボン回収チャンバー119が設けられており、生成したカーボンナノホーン集合体117はナノカーボン回収チャンバー119に回収される。
- [0042] プルーム109は、レーザー光103の照射位置におけるグラファイトロッド101の接線に垂直な方向、すなわち法線方向に発生するため、この方向に搬送管141を設ければ、効率よく炭素蒸気をナノカーボン回収チャンバー119に導き、カーボンナノホーン集合体117の粉体を回収することができる。たとえば、照射角が45°の場合、鉛直に対して45°をなす方向に搬送管141を設けることができる。
- [0043] ナノカーボン製造装置125では、製造チャンバー107内に、ZnSeウインドウ133近傍からグラファイトロッド101の表面近傍までのレーザー光103の通過経路に沿って、光路を覆う筒状のカバー167が設けられている。カバー167は、グラファイトロッド101の近傍まで設けられており、その端部が開口しており、レーザー光103は、このカバー167内を通過してグラファイトロッド101の表面に照射される。
- [0044] カバー167を設けることにより、グラファイトロッド101への光の照射経路を確保しつつ、グラファイトロッド101の表面にレーザー光103が照射されて生じた炭素蒸気から得られるすす状物質が付着しないように、ZnSeウインドウ133を遮蔽することができる。ZnSeウインドウ133表面へのすす状物質の付着が抑制されるため、ZnSeウイン

ドウ133表面におけるレーザー光103の吸収が抑制される。よって、グラファイトロッド101の表面に照射されるレーザー光103のパワー密度のぶれを抑制することができる。また、ZnSeウインドウ133の過度の温度上昇を抑制することができる。よって、グラファイトロッド101表面へのレーザー光103の照射位置の熱レンズ効果によるずれを抑制することができる。また、過加熱によるZnSeウインドウ133の劣化や、それに伴う破損または燃焼を抑制することができる。

- [0045] したがって、ナノカーボン製造装置125は、カーボンナノホーン集合体117を高い収率で安定的に生産することができる。また、耐久性に優れた装置構成を容易に実現することができる。
- [0046] また、ナノカーボン製造装置125には、プルーム109の発生方向に沿ってプルーム109を覆うように搬送管141が設けられている。搬送管141は、製造チャンバー107の側方に備えられたナノカーボン回収チャンバー119に連通している。グラファイトロッド101の表面にレーザー光103が照射されるとプルーム109が生じ、プルーム109から放出されて炭素蒸気はすす状物質となる。ナノカーボン製造装置125では、プルーム109の発生方向に搬送管141が形成されているため、搬送管141を通って確実にナノカーボン回収チャンバー119へと導かれる。このため、カーボンナノホーン集合体117の回収効率を向上させることができる。なお、プルーム109は、グラファイトロッド101の表面におけるレーザー光103の照射位置の接線に対して垂直な方向に発生する。
- [0047] また、ナノカーボン製造装置125では、グラファイトロッド101を円周方向に回転させながらその側面にレーザー光103を照射する構成となっている。レーザー光103の方向とプルーム109の発生方向が一致していない位置関係にてレーザー光103照射がなされる。こうすれば、レーザー光103の照射経路をさえぎらない位置でカーボンナノホーン集合体117を効率よく回収することができる。
- [0048] また、ナノカーボン製造装置125では、グラファイトロッド101の側面にて発生するプルーム109の角度を予め予測することができる。このため、搬送管141の位置や角度を精密に制御可能である。よって、後述する条件で効率よくカーボンナノホーン集合体117を製造し、また、確実に回収することができる。

- [0049] 次に、図1のナノカーボン製造装置125を用いたカーボンナノホーン集合体117の製造方法について具体的に説明する。
- [0050] ナノカーボン製造装置125において、グラファイトロッド101として、高純度グラファイト、たとえば丸棒状焼結炭素や圧縮成形炭素等を用いることができる。
- [0051] また、レーザー光103として、たとえば、高出力CO₂ガスレーザーを用いることができる。レーザー光103のグラファイトロッド101への照射は、Ar、He等の希ガスをはじめとする反応不活性ガス雰囲気、たとえば10³Pa以上10⁵Pa以下の雰囲気中で行う。また、製造チャンバー107内を予めたとえば10⁻²Pa以下に減圧排気した後、不活性ガス雰囲気とすることが好ましい。
- [0052] また、グラファイトロッド101の側面におけるレーザー光103のパワー密度がほぼ一定、たとえば5kW/cm²以上25kW/cm²以下となるようにレーザー光103の出力、スポット径、および照射角を調節することが好ましい。
- [0053] レーザー光103の出力はたとえば1kW以上50kW以下とする。また、レーザー光103のパルス幅はたとえば0.5秒以上とし、好ましくは0.75秒以上とする。こうすることにより、グラファイトロッド101の表面に照射されるレーザー光103の累積エネルギーを充分確保することができる。このため、カーボンナノホーン集合体117を効率よく製造することができる。また、レーザー光103のパルス幅はたとえば1.5秒以下とし、好ましくは1.25秒以下とする。こうすることにより、グラファイトロッド101の表面が過剰に加熱されることにより表面のエネルギー密度が変動し、カーボンナノホーン集合体の収率が低下するのを抑制することができる。レーザー光103のパルス幅は、0.75秒以上1秒以下とすることがさらに好ましい。こうすれば、カーボンナノホーン集合体117の生成率および収率をともに向上させることができる。
- [0054] また、レーザー光103照射における休止幅は、たとえば0.1秒以上とすべき、0.25秒以上とすることが好ましい。こうすることにより、グラファイトロッド101表面の過加熱をより一層確実に抑制することができる。
- [0055] レーザー光103は、照射角が一定となるように照射される。レーザー光103の照射角を一定に保ちながら、グラファイトロッド101をその中心軸に対して所定の速度で回転させることにより、グラファイトロッド101の側面の円周方向にレーザー光103を一

定のパワー密度で連続的に照射することができる。また、グラファイトロッド101をその長さ方向にスライドさせることにより、グラファイトロッド101の長さ方向にレーザー光103を一定のパワー密度で連続的に照射することができる。

- [0056] このときの照射角は30°以上60°以下とすることが好ましい。照射角とは、レーザー光103の照射位置におけるグラファイトターゲットの表面に対する垂線とレーザー光103とのなす角のことである。円筒形のグラファイトターゲットであるグラファイトロッド101を用いる場合、グラファイトロッド101の長さ方向に垂直な断面において、照射位置と円の中心とを結ぶ線分と、水平面とのなす角と定義する。
- [0057] この照射角を30°以上とすることにより、照射するレーザー光103の反射、すなわち戻り光の発生を防止することができる。また、発生するブルーム109がZnSeウインドウ133を通じてZnSe平凸レンズ131へ直撃することが防止される。このため、ZnSe平凸レンズ131を保護し、またカーボンナノホーン集合体117のZnSeウインドウ133への付着防止に有効である。よって、グラファイトロッド101に照射されるレーザー光103のパワー密度を安定化し、カーボンナノホーン集合体117を高い収率で安定的に製造することができる。
- [0058] また、レーザー光103を60°以下で照射することにより、アモルファスカーボンの生成を抑制し、生成物中のカーボンナノホーン集合体117の割合、すなわちカーボンナノホーン集合体117の収率を向上させることができる。また、照射角は45°±5°とすることが特に好ましい。約45°で照射することにより、生成物中のカーボンナノホーン集合体117の割合をより一層向上させることができる。
- [0059] また、ナノカーボン製造装置125では、グラファイトロッド101の側面にレーザー光103を照射する構成となっている。このため、ZnSe平凸レンズ131の位置を固定した状態で、グラファイトロッド101の高さを調節することにより、側面への照射角度を変えることができる。レーザー光103の照射角度を変えることにより、グラファイトロッド101の表面におけるレーザー光103の照射面積を変え、パワー密度を可変とし、確実に調節することができる。
- [0060] 具体的には、たとえば、ZnSe平凸レンズ131の位置を固定した場合において、照射角を30°とすれば、パワー密度を高くすることができる。また、たとえば照射角度を

60° とすることにより、パワー密度を低く制御できる。

- [0061] また、照射時のレーザー光103のグラファイトロッド101側面へのスポット径は、たとえば0.5mm以上5mm以下とすることができる。
- [0062] また、レーザー光103のスポットを、たとえば0.01mm/sec以上55mm/sec以下の線速度(周速度)で移動させることができ。線速度が大きいと、一回のパルス照射においてグラファイトロッド101表面にレーザー光103が照射される長さが長い一方、グラファイトロッド101の表面から炭素の蒸発が生じるのは、表面からの深度が小さい領域に限られる。これに対して、線速度が小さいと、一回のパルス照射においてグラファイトロッド101表面にレーザー光103が照射される長さは短いが、グラファイトロッド101の表面からの深度が大きい領域まで蒸発が生じる。
- [0063] 単位時間あたりのすす状物質の生成量すなわちすす状物質の生成率および生成したすす状物質中のカーボンナノホーン集合体117の収率は、一回のパルス光照射における照射位置の移動距離および炭素が蒸発する深度に依存するものと推察される。炭素が蒸発する深度が深すぎると、カーボンナノホーン集合体117以外のものが生成し、収率が低下する。また、深度が浅すぎると、カーボンナノホーン集合体117が充分に生成されてない。線速度を上述の条件とすることにより、カーボンナノホーン集合体117を高い収率で効率よく製造することができる。
- [0064] たとえば、直径100mmのグラファイトターゲットの表面にレーザー光103を照射する場合には、回転装置115によって直径100mmのグラファイトロッド101を円周方向に一定速度で回転させ、回転数をたとえば0.01rpm以上10rpm以下とすると、上述の線速度を実現できる。なお、グラファイトロッド101の回転方向に特に制限はないが、照射位置がレーザー光103から遠ざかる方向、すなわち図1においては図中に矢印で示したようにレーザー光103から搬送管141に向かう方向、に回転させることがほしい。こうすることにより、カーボンナノホーン集合体117をより一層確実に回収することができる。
- [0065] ナノカーボン回収チャンバー119に回収されたすす状物質は、カーボンナノホーン集合体117を主として含み、たとえば、カーボンナノホーン集合体117が90wt%以上含まれる物質として回収される。

- [0066] ナノカーボン製造装置125を用いたナノカーボンの製造において、ZnSeウインドウ133からグラファイトロッド101表面に至るレーザー光103の出射方向に沿って、またはグラファイトロッド101の表面から搬送管141を経由してナノカーボン回収チャンバー119に至る方向に沿って気流を形成してもよい。たとえば、レーザー光103の進行方向に沿った気流をレーザー光源111の側からグラファイトロッド101の側に向かつて生じさせる吸気部をさらに設けてもよい。このようにすれば、すす状物質がグラファイトロッド101の表面からZnSeウインドウ133方向に付着することをさらに確実に抑制することができる。また、生成したカーボンナノホーン集合体117を搬送管141からナノカーボン回収チャンバー119へとより一層確実に導くことができるため、カーボンナノホーン集合体117の回収率を向上させることができる。
- [0067] また、ナノカーボン製造装置125においては、ZnSe平凸レンズ131およびZnSeウインドウ133を用いたが、ZnSeウインドウ133としてZnSe平凸レンズを設けてもよい。すなわち、この場合には製造チャンバー107外にZnSe平凸レンズ131を設けずに、製造チャンバー107を封止するウインドウとしてレンズを用いる構成となる。こうすることにより、簡便で生産効率にすぐれた装置構成が実現される。
- [0068] なお、図1の装置および以降の実施形態で説明する装置では、レーザー光源111を製造チャンバー107の上方に設けている。そして、レーザー光103照射により生成したカーボンナノホーン集合体117を、搬送管141を経由して製造チャンバー107の側方に設けられたナノカーボン回収チャンバー119において回収する構成としている。本実施形態および以降の実施形態において、レーザー光源111の配置は必ずしも製造チャンバー107の上方に設ける態様に限定されない。
- [0069] たとえば、図2は、カバー167を有するナノカーボン製造装置の別の構成を示す図である。図2の装置では、レーザー光源111が製造チャンバー107の側方に設けられ、製造チャンバー107の側面からグラファイトロッド101に向かつてレーザー光103が照射される。また、このとき、プルーム109はグラファイトロッド101の照射位置の接線に垂直な方向に発生する。図2の位置関係では、プルーム109が製造チャンバー107において鉛直上方に対して45°をなす方向に向かつて発生することになる。図2の装置でも、図1の装置と同様に、グラファイトロッド101の表面近傍からプルームの

発生方向に平行に搬送管141を設け、プルーム109から生成したすす状物質が製造チャンバー107の上部に設けられたナノカーボン回収チャンバー119に回収されるような構成となっている。

- [0070] なお、図2の装置において、回転装置115は、グラファイトロッド101を保持し、その中心軸に沿って回転させる回転機構を有している。また、図2の装置の場合も、図1の装置と同様、グラファイトロッド101はその中心軸方向に移動することもできるように構成されている。
- [0071] また、図1の装置においては、ZnSeウインドウ133を保護するための遮蔽部材として、レーザー光源111から出射したレーザー光103の光路に沿ってその光路を覆うカバー167を設けたが、遮蔽部材の態様はこれに限定されない。
- [0072] たとえば、図3は、図1のナノカーボン製造装置125のカバー167にかえて隔壁179を設けた構成の装置である。その他の構成は、ナノカーボン製造装置125と同様である。図3の装置では、製造チャンバー107内に隔壁179が設けられている。隔壁179は、ZnSeウインドウ133が設けられている室と、グラファイトロッド101が設けられている室の二室に製造チャンバー107を区画する。隔壁179には、レーザー光103を通過させてグラファイトロッド101に到達させるための孔が設けられている。このため、グラファイトロッド101へのレーザー光照射が可能である。隔壁179を設けることにより、グラファイトロッド101側から生じたすす状物質がZnSeウインドウ133側に移動するのを遮蔽することができる。このため、すす状物質がZnSeウインドウ133表面に付着するのを抑制することができる。
- [0073] また、図1～図3の装置では、窓として、製造チャンバー107の壁面にZnSeウインドウ133が設けられていたが、窓は製造チャンバー107中に一部を露出させた態様であればこの構成に限定されない。たとえば、出射端面にウインドウを有するレーザー光源111が製造チャンバー107中に配置されていてもよい。この場合、レーザー光源111とグラファイトロッド101との間をカバー167または隔壁179等の遮蔽部材によって遮蔽することにより、レーザー光源111のウインドウへのすす状物質の付着が抑制される。また、ZnSe平凸レンズ131が製造チャンバー107内に設けられていてもよい。この場合、ZnSe平凸レンズ131とグラファイトロッド101との間を、たとえばカバー

167または隔壁179によって遮蔽することにより、ZnSe平凸レンズ131の表面へのすす状物質の付着を抑制することができる。

[0074] (第二の実施形態)

本実施形態は、光源111からの出射光をグラファイトロッド101の表面に直接照射せずに、反射させて光路を変えた後、グラファイトロッド101の表面に照射する構成のナノカーボン製造装置に関する。

[0075] 図4は、本実施形態に係るナノカーボン製造装置173を側方から見た様子を示す断面図である。本実施形態において、第一の実施形態に記載のナノカーボン製造装置125と同様の構成要素には同様の符号を付し、適宜説明を省略する。

[0076] ナノカーボン製造装置125(図1)では、レーザー光源111から出射したレーザー光103をグラファイトロッド101表面におけるスポット径が所定の大きさになるようZnSe平凸レンズ131で集光した後、ZnSeウインドウ133から製造チャンバー107内に照射される構成であったのに対し、図4のナノカーボン製造装置173では、レーザー光源111から出射したレーザー光103は集光されずにZnSeウインドウ133から製造チャンバー107内に照射される。ナノカーボン製造装置173はレーザー光103の光路を変えるための平面鏡169および放物面鏡171を有しているため、レーザー光103は製造チャンバー107内において、平面鏡169で反射され、さらに放物面鏡171において反射される。放物面鏡171で反射した光は放物面鏡171の焦点付近に設置されたグラファイトロッド101の表面に集光される。

[0077] このように、ナノカーボン製造装置173においては、ZnSeウインドウ133を通って製造チャンバー107中に入射したレーザー光103が、直接グラファイトロッド101表面に照射されるのではなく、平面鏡169および放物面鏡171によって二回反射されて光路を変えた後、グラファイトロッド101の表面に照射される。また、平面鏡169および放物面鏡171を経由するため、ナノカーボン製造装置173では、ナノカーボン製造装置125に比べ、ZnSeウインドウ133からグラファイトロッド101に至る光路の長さを増加させることができる。

[0078] このため、グラファイトロッド101の表面から発生したプルーム109およびプルーム109から得られるすす状物質のZnSeウインドウ133への付着が抑制される装置構成と

なっている。よって、ナノカーボン製造装置173を長期間使用しても、グラファイトロッド101の表面に照射されるレーザー光103のパワー密度の変化を抑制することができる。このため、カーボンナノホーン集合体117の収率の低下を抑制し、カーボンナノホーン集合体117を安定的に連続生産することができる。また、ナノカーボン製造装置173の装置寿命を長期化することができる。

- [0079] ナノカーボン製造装置173において、平面鏡169または放物面鏡171の材料として、たとえばCuを用いることができる。Cuは熱伝導率が高いため、表面にすす状物質が付着しても効率よく放熱される。また、平面鏡169および放物面鏡171は、表面にたとえばAuまたはMoによるコーティングが施されていてもよい。このような材料を用いることにより、平面鏡169または放物面鏡171の破損を抑制することができる。
- [0080] なお、ナノカーボン製造装置173では、レーザー光源111からの出射光が2回反射された後、グラファイトロッド101の表面に照射される構成としたが、レーザー光源111からの出射光が光路を変えた後グラファイトロッド101の表面に到達する構成であれば反射の回数に特に制限はなく、1回反射させる構成とすることもできるし、または3回以上反射させてグラファイトロッド101に照射する構成としてもよい。
- [0081] また、ナノカーボン製造装置173では、レーザー光103を放物面鏡171で反射することにより、グラファイトロッド101の表面に集光する構成としたが、グラファイトロッド101の表面に集光できる構成であれば、反射鏡の形状は放物面鏡171には限定されず、たとえば他の形状の凹面鏡を用いることも可能である。また、複数の反射鏡を組み合わせてグラファイトロッド101の表面に集光してもよい。
- [0082] (第三の実施形態)
- 本実施形態は、ナノカーボン製造装置の別の構成に関する。本実施形態においても、第一または第二の実施形態に記載のナノカーボン製造装置125(図1)またはナノカーボン製造装置173(図4)と同様の構成要素には同様の符号を付し、適宜説明を省略する。
- [0083] 図5は、本実施形態に係るナノカーボン製造装置175を側方から見た様子を示す断面図である。ナノカーボン製造装置175の基本的な装置構成はナノカーボン製造装置173(図4)と同様であるが、ナノカーボン製造装置175では、レーザー光103の

通過経路を保護するためのカバー167が設けられている点がナノカーボン製造装置173と異なる。

[0084] カバー167を設けることにより、第一の実施形態において説明したように、プルーム109から発生したすす状物質が直接ZnSeウインドウ133に付着するのをさらに確実に抑制することができる。また、平面鏡169または放物面鏡171の表面にすす状物質が付着することもより一層確実に防止することができる。このため、グラファイトロッド101の表面におけるレーザー光103の照射位置またはパワー密度のぶれを抑制し、カーボンナノホーン集合体117の収率の低下が抑制される。また、装置寿命もより一層長期化することができる。

[0085] なお、図5のナノカーボン製造装置175では、製造チャンバー107の壁面に接してカバー167が設けられているため、製造チャンバー107の内部にZnSeウインドウ133が設けられた構成としたが、不活性ガスを製造チャンバー107内に封止できる構成であればZnSeウインドウ133の位置は製造チャンバー107内部に限定されず、たとえば製造チャンバー107の壁面に設けてもよい。たとえば、図6は、ZnSeウインドウ133が製造チャンバー107の壁面に設けられているナノカーボン製造装置176を示す図である。

[0086] (第四の実施形態)

以上の実施形態においては、グラファイトロッドを用いた場合を例に説明をしたが、これらのいずれの実施形態においてもグラファイトターゲットの形状は円筒形には限らず、たとえばシート状、棒状等としてもよい。

[0087] たとえば、図7は、第3の実施形態に記載のナノカーボン製造装置175(図5)において、シート状のグラファイトターゲットを用いる場合の装置構成を示す図である。

[0088] 図7のナノカーボン製造装置177において、グラファイトターゲット139は、レーザー光103の照射のターゲットとなる固体炭素単体物質である。グラファイトターゲット139はターゲット供給プレート135上のターゲット保持部153に保持されている。プレート保持部137は、ターゲット供給プレート135を水平方向に並進移動させる。このため、ターゲット供給プレート135が移動すると、その上に設置されたグラファイトターゲット139が移動し、レーザー光103の照射位置とグラファイトターゲット139の表面との

相対的な位置が移動する構成となっている。

- [0089] たとえば、ターゲット供給プレート135の底面およびプレート保持部137の表面にネジ山(不図示)を形成し、ラックピニオン方式でターゲット供給プレート135が図7の左上から右下に向かって移動できるように構成することができる。また、ターゲット供給プレート135の表面に溝部(不図示)等を形成しておき、ターゲット保持部153の底部に溝部をスライドできるように凸部(不図示)を形成し、溝部にこの凸部を掛合することにより、ターゲット保持部153およびターゲット保持部153に保持されたグラファイトターゲット139が図7の紙面に垂直な方向に移動可能な構成とすることができる。
- [0090] このような構成とすることにより、グラファイトターゲット139をレーザー光源111から出射するレーザー光103の照射位置に供給することができる。
- [0091] さらに、グラファイトターゲットの形状をシート状あるいは棒状とした際に、その厚さを、レーザー光103が1回乃至数回照射されるとすべて蒸発し、使いきる程度の大きさとすることにより、カーボンナノホーン集合体117の収率をより一層向上させることができる。これは、レーザー光103が一度照射されると、グラファイトロッド101の表面が粗面化するため、再度レーザー光103が照射された際にパワー密度のぶれが生じるため、グラファイトロッド101の表面へのレーザー光103の照射回数は少ないほどカーボンナノホーン集合体117を安定的に生産することができるためである。
- [0092] 以上、本発明を実施形態に基づき説明した。これらの実施形態は例示であり様々な変形例が可能のこと、またそうした変形例も本発明の範囲にあることは当業者に理解されるところである。
- [0093] また、以上の実施形態に係る装置では、レーザー光103の照射によって得られたすす状物質がナノカーボン回収チャンバー119に回収される構成となっているが、適当な基板上に堆積して回収することや、ダストバッグによる微粒子回収の方法によって回収することもできる。また、不活性ガスを反応容器内で流通させて、不活性ガスの流れによりすす状物質を回収することもできる。
- [0094] 以上の実施形態において、カーボンナノホーン集合体117を製造する際の、グラファイトターゲット表面における照射光のパワー密度、パルス幅、休止幅、またはグラファイトターゲットの移動速度等の条件は、グラファイトターゲットの形状や目的とするカ

一ボンナノホーン集合体117の形状に応じて適宜選択することができる。また、カーボンナノホーン集合体117を構成するカーボンナノホーンの形状、径の大きさ、長さ、先端部の形状、炭素分子やカーボンナノホーン間の間隔等は、レーザー光103の照射条件などによって様々に制御することが可能である。

- [0095] また、第二一第四の実施形態に示した装置(図4ー図7)では、窓として、製造チャンバー107の壁面にZnSeウインドウ133が設けられていたが、窓は製造チャンバー107中に一部を露出させた様であればこの構成に限定されない。たとえば、出射端面にウインドウを有するレーザー光源111が製造チャンバー107中に配置されていてもよい。この場合、レーザー光源111からの出射光を、たとえば平面鏡169または放物面鏡171等の反射鏡によって反射させた後、グラファイトロッド101の表面に到達させることにより、レーザー光源111のウインドウへのすす状物質の付着が抑制される。また、ZnSe平凸レンズ131が製造チャンバー107内に設けられていてもよい。この場合、ZnSe平凸レンズ131を透過した光を、たとえば平面鏡169または放物面鏡171等の反射鏡によって反射させた後、グラファイトロッド101の表面に到達させることにより、ZnSe平凸レンズ131の表面へのすす状物質の付着を抑制することができる。
- [0096] また、第二一第四の実施形態に示した装置(図4ー図7)において、放物面鏡171を冷却するための冷却機構をさらに備えていてもよい。放物面鏡171を冷却することにより、放物面鏡171の表面にすす状物質が付着した際にも過度の加熱が抑制されるため、さらに装置の寿命を長期化することができる。また、放物面鏡171の表面に付着したすす状物質を除去するための掃塵機構を備えていてもよい。このような構成とすれば、放物面鏡171の表面にすす状物質が付着した場合にも、適当なタイミングでこれを除去することができるため、グラファイトロッド101表面に照射される光のパワー密度が一定の値となるようにさらに確実に制御することができる。このため、カーボンナノホーン集合体の収率をより一層向上させることができる。また、装置の寿命をさらに長期化することができる。なお、ここでは放物面鏡171の場合を例に冷却機構および掃塵機構について説明をしたが、必要に応じてこれらの機構を平面鏡169に対しても設けることができる。

[0097] 以下、本発明を実施例によりさらに説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0098] (実施例)

本実施例では、図2に示したナノカーボン製造装置126および図8、図9、図10に示したナノカーボン製造装置を用いてレーザーアブレーション法によるカーボンナノホーン集合体117の製造を行った。ただし、図8および図9は、それぞれ図4のナノカーボン製造装置173および図5のナノカーボン製造装置175において、ナノカーボン製造装置126と同様にレーザー光103を製造チャンバー107の側面から入射する構成とした装置である。また、図10の装置は、図2のナノカーボン製造装置126と同様の構成であってカバー167を有しない点がナノカーボン製造装置126と異なる構成のナノカーボン製造装置である。

[0099] 固体状炭素物質として直径100mmの焼結丸棒炭素を真空容器内に設置し、容器内を 10^{-2} Paにまで減圧排気した後、Arガスを 1.01325×10^5 Paの雰囲気圧となるように導入した。次いで、高出力のCO₂レーザー光を前記固体状炭素物質に室温にて照射した。レーザーの出力を100Wとし、固体状炭素物質表面におけるパワー密度を $22\text{ kW}/\text{cm}^2$ とした。パルス幅を1sec、休止幅は250msecとし、固体状炭素物質を6rpmで回転させながら、照射角が45°となるようレーザー光を照射した。レーザー光照射はZnSeウインドウが破損するまで行い、各装置においてZnSeウインドウが破損するまでの時間を測定した。

[0100] さらに、図10の装置および図8のナノカーボン製造装置173を用いた場合については、製造時間とカーボンナノホーン集合体117の収率の関係を調べた。

[0101] 図11は、各装置におけるZnSeウインドウの破損時間を示す図である。図11において、「ZnSe」は、図10の装置についての実験結果である。また、「ZnSe+ナノカーボン付着防止コーン」、「放物面鏡」、および「放物面鏡+ナノカーボン付着防止コーン」は、それぞれ、図2、図8、および図9に示したナノカーボン製造装置についての実験結果である。

[0102] 図11より、ZnSe平凸レンズ131を用いて集光する装置構成において、カバー167を設けることにより、ZnSeウインドウ133の耐久時間が増すことが明らかになった。ま

た、放物面鏡171を用いて集光することにより、ZnSeウインドウ133の耐久時間は顕著に増加し、さらにこれにカバー167を設けることにより増加することが明らかになった。

[0103] この結果より、放物面鏡171を用いてレーザー光103を反射および集光した後グラファイトロッド101の表面に照射する構成とすることにより、装置寿命を長期化できることが確かめられた。

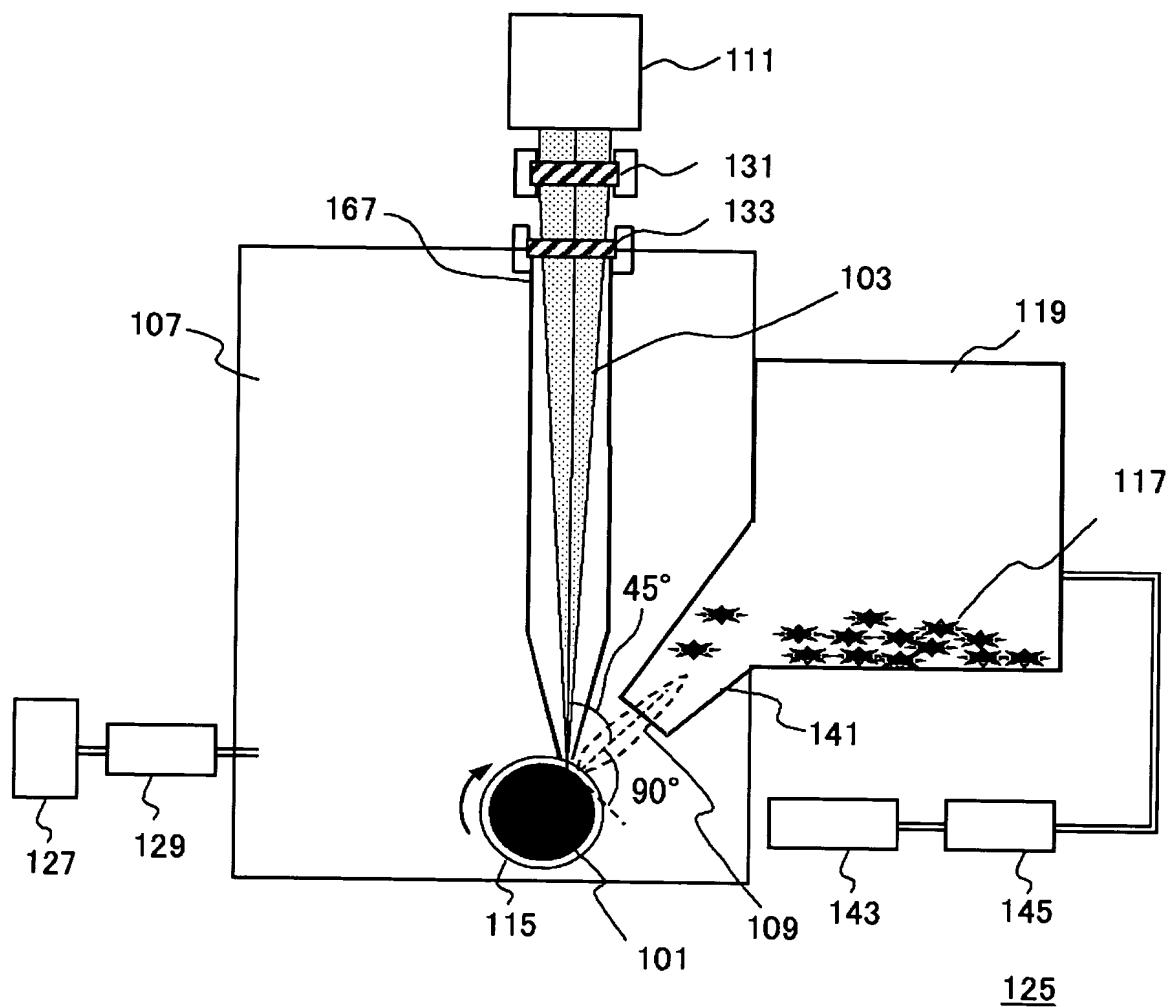
[0104] また、図12は、図11における「ZnSe」と「放物面鏡」の装置すなわち図10および図8の装置について、製造時間とカーボンナノホーン集合体117の収率との関係を示す図である。図12より、図10の装置では、製造時間の経過に従ってカーボンナノホーン集合体117の収率が低下している。これに対し、図8のナノカーボン製造装置173を用いた場合、製造時間が長期化しても、カーボンナノホーン集合体117の収率は低下せず、ほぼ一定の収率となることがわかる。このため、平面鏡169および放物面鏡171によってレーザー光103を反射させ、また放物面鏡171によってグラファイトロッド101の表面にレーザー光103を集光することにより、カーボンナノホーン集合体を安定的に高い収率で製造することが可能であることが明らかになった。

請求の範囲

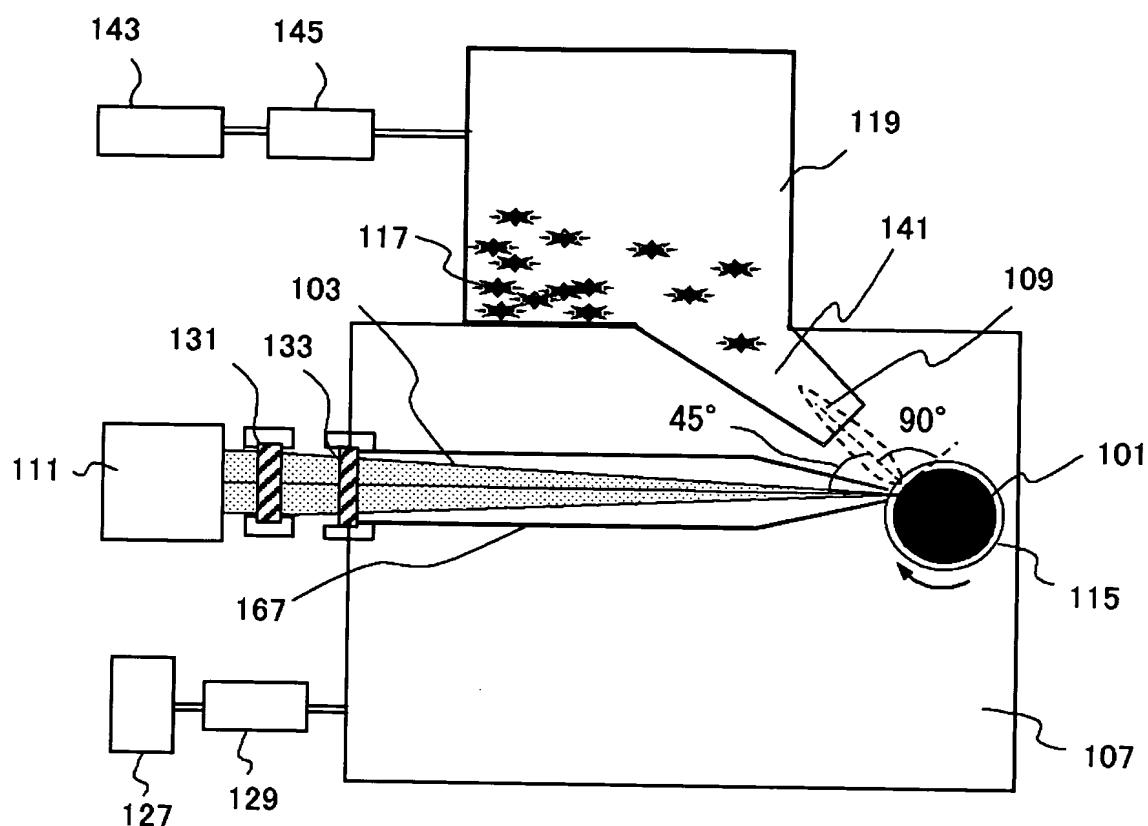
- [1] グラファイトターゲットと、
前記グラファイトターゲットを収容する室と、
前記室の一部に設けられた窓部と、
前記窓部を介して前記グラファイトターゲットの表面に光を照射する光源と、
前記光の照射により前記グラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気より発生する
ナノカーボンを回収する回収部と、
前記窓部と前記グラファイトターゲットとの間に介在する遮蔽部材と、
を備えることを特徴とするナノカーボンの製造装置。
- [2] 請求の範囲第1項に記載のナノカーボンの製造装置において、
前記窓部と前記遮蔽部材との間に、前記光を前記グラファイトターゲットの前記表
面に導くための光学部材を備えることを特徴とするナノカーボンの製造装置。
- [3] 請求の範囲第1項または第2項に記載のナノカーボンの製造装置において、前記
光学部材が反射部材を含むことを特徴とするナノカーボンの製造装置。
- [4] グラファイトターゲットと、
前記グラファイトターゲットを収容する室と、
前記室の一部に設けられた窓部と、
前記窓部を介して前記グラファイトターゲットの表面に光を照射する光源と、
前記光の照射により前記グラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気より発生する
ナノカーボンを回収する回収部と、
前記窓を透過した透過光を反射させ、前記グラファイトターゲットの表面に導くため
の反射部材と、
を備えることを特徴とするナノカーボンの製造装置。
- [5] 請求の範囲第4項に記載のナノカーボンの製造装置において、前記反射部材と前
記グラファイトターゲットとの間に介在する遮蔽部材をさらに備えることを特徴とするナ
ノカーボンの製造装置。
- [6] 請求の範囲第3項乃至第5項いずれかに記載のナノカーボンの製造装置において
、前記反射部材が集光作用を有することを特徴とするナノカーボンの製造装置。

- [7] 請求の範囲第3項乃至第6項いずれかに記載のナノカーボンの製造装置において、前記反射部材が放物面鏡であることを特徴とするナノカーボンの製造装置。
- [8] 請求の範囲第1項乃至第7項いずれかに記載のナノカーボンの製造装置において、円筒状の前記グラファイトターゲットを保持するとともに該グラファイトターゲットを中心軸周りに回転させるターゲット保持手段を備えることを特徴とするナノカーボンの製造装置。
- [9] 請求の範囲第1項乃至第8項いずれかに記載のナノカーボンの製造装置において、前記ナノカーボンがカーボンナノホーン集合体であることを特徴とするナノカーボンの製造装置。

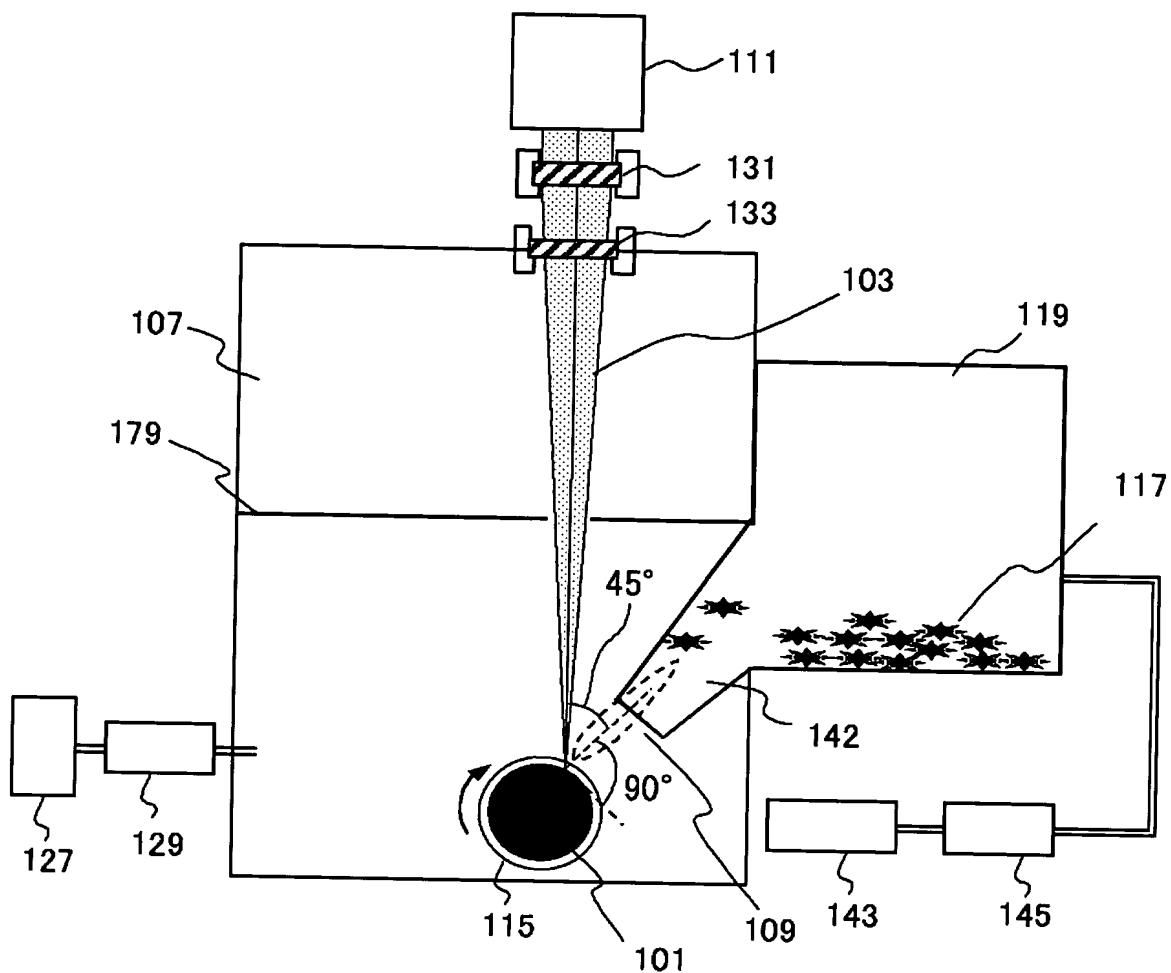
[図1]



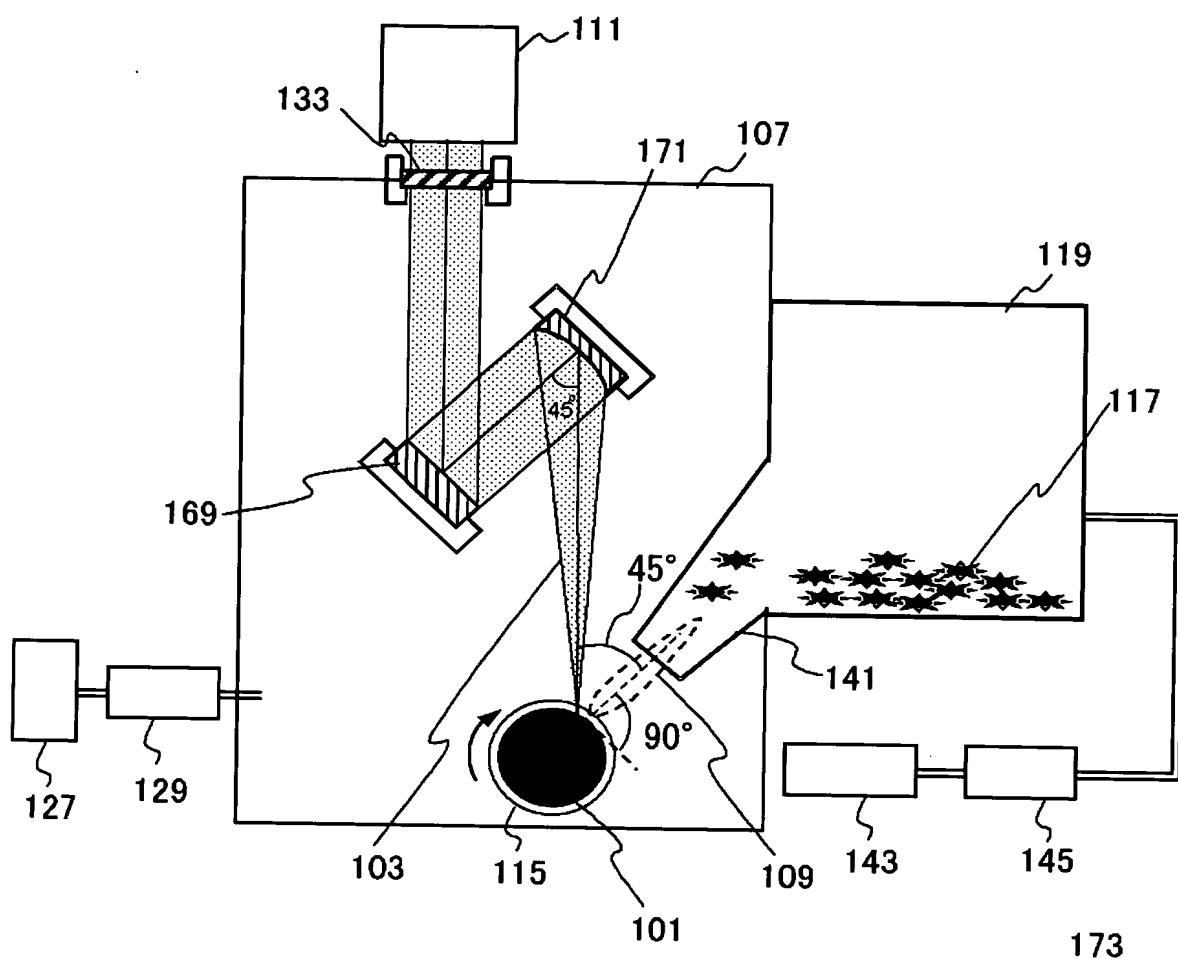
[図2]

126

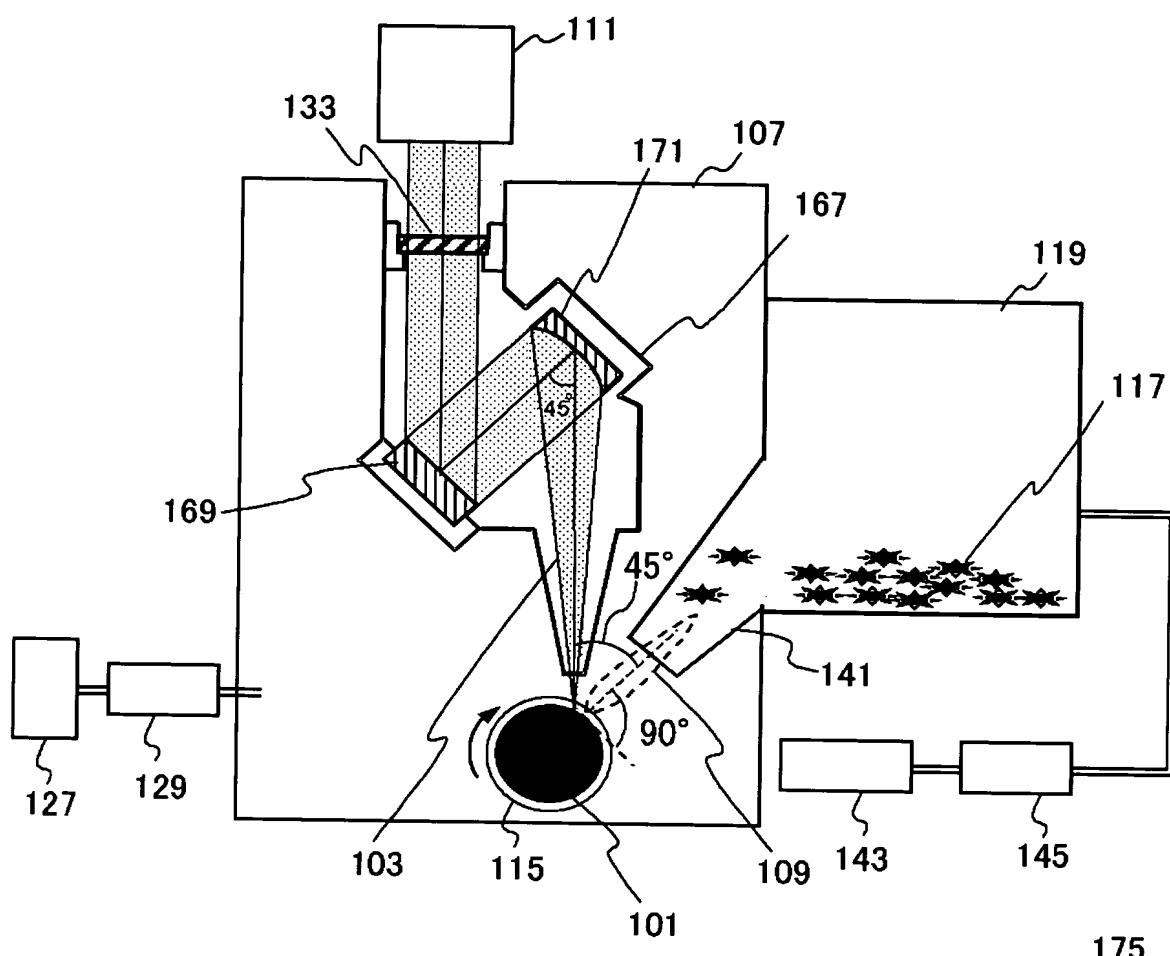
[図3]



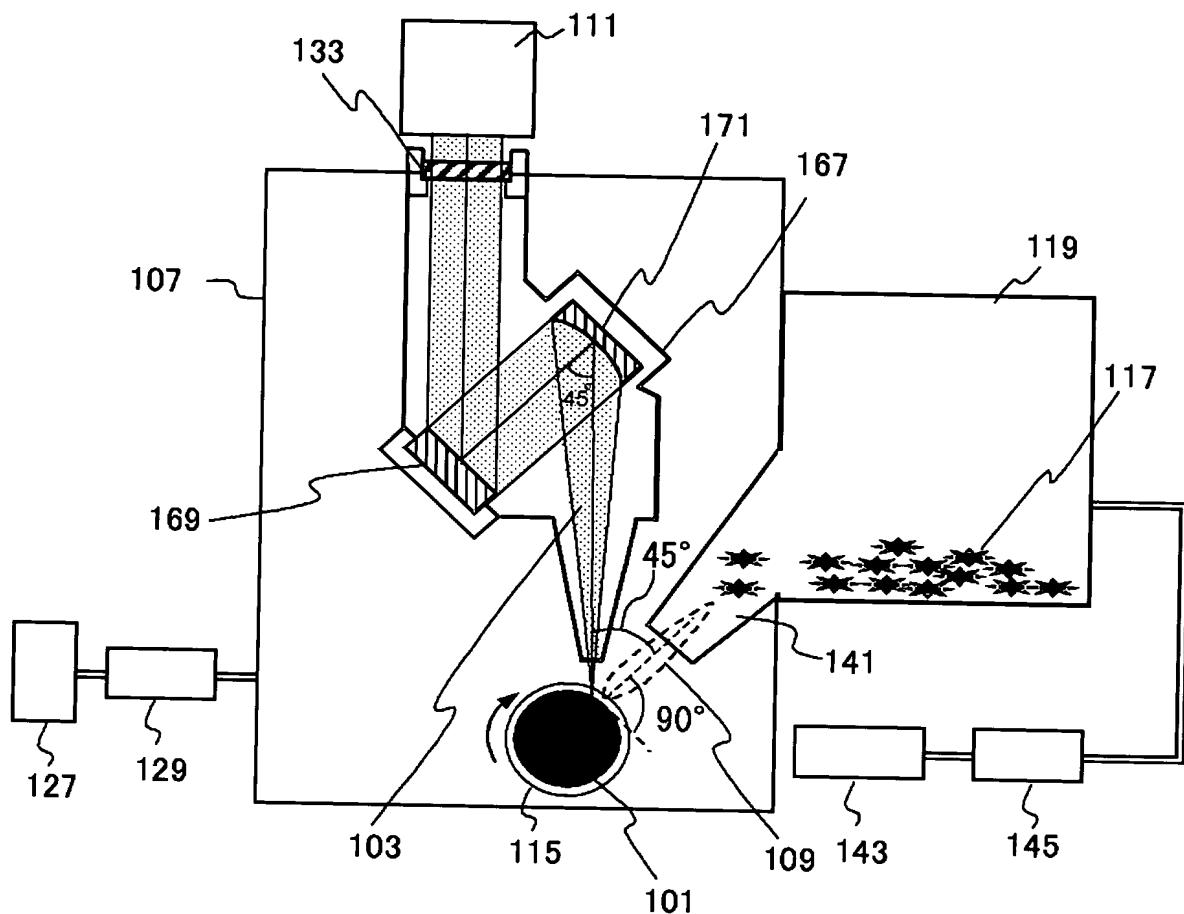
[図4]



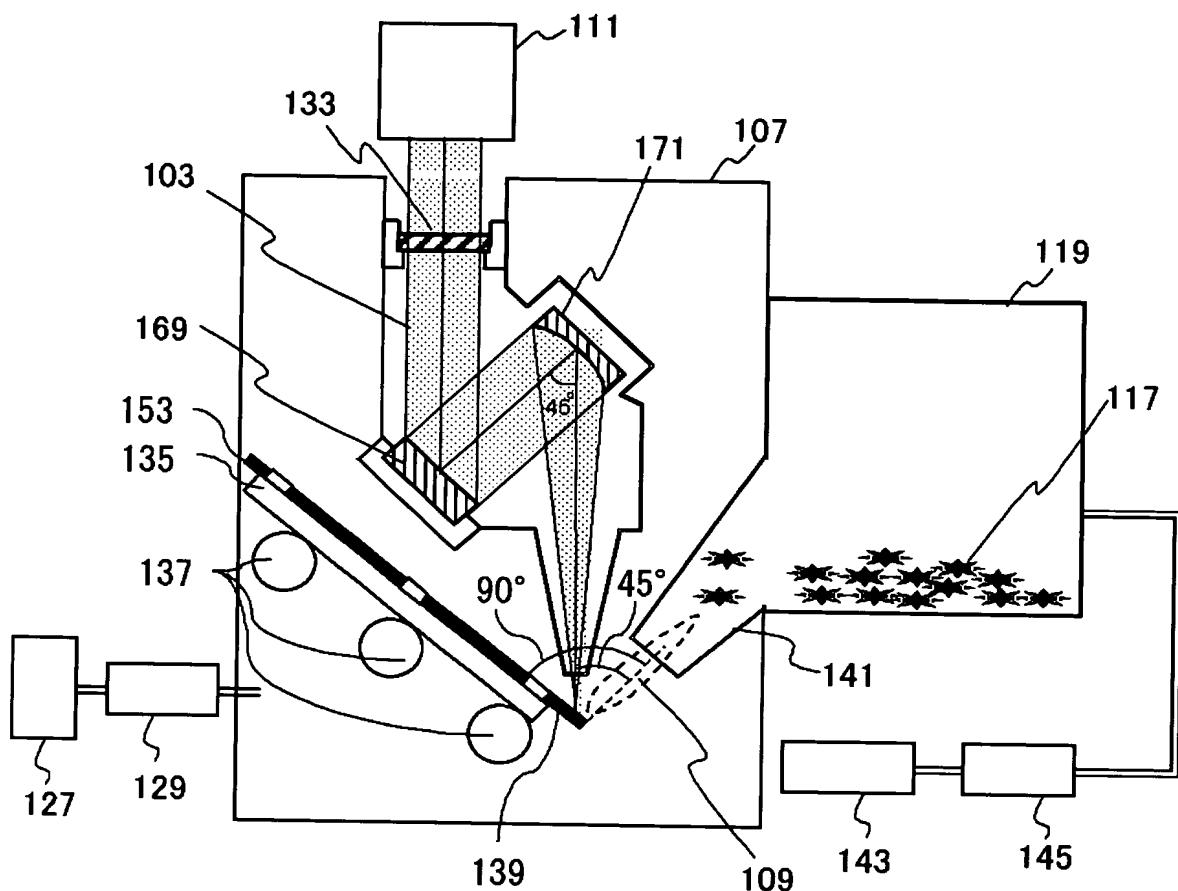
[図5]

175

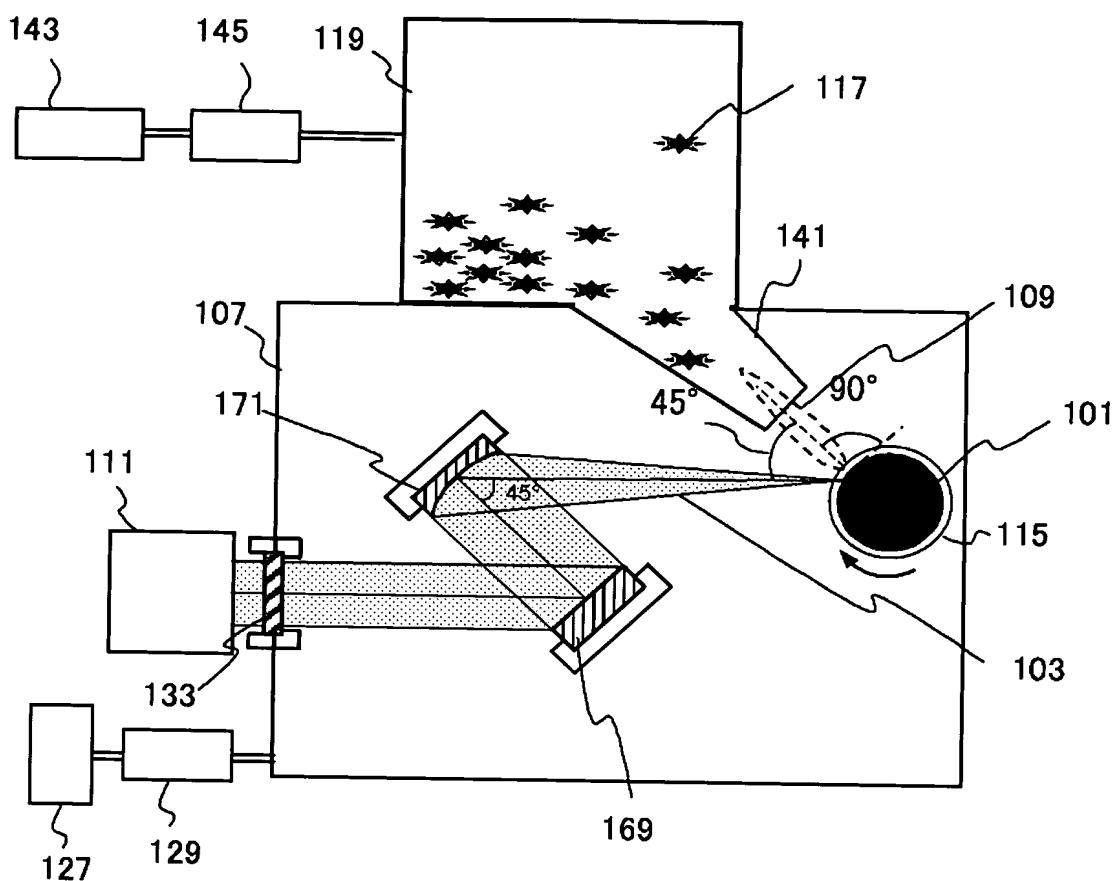
[図6]

176

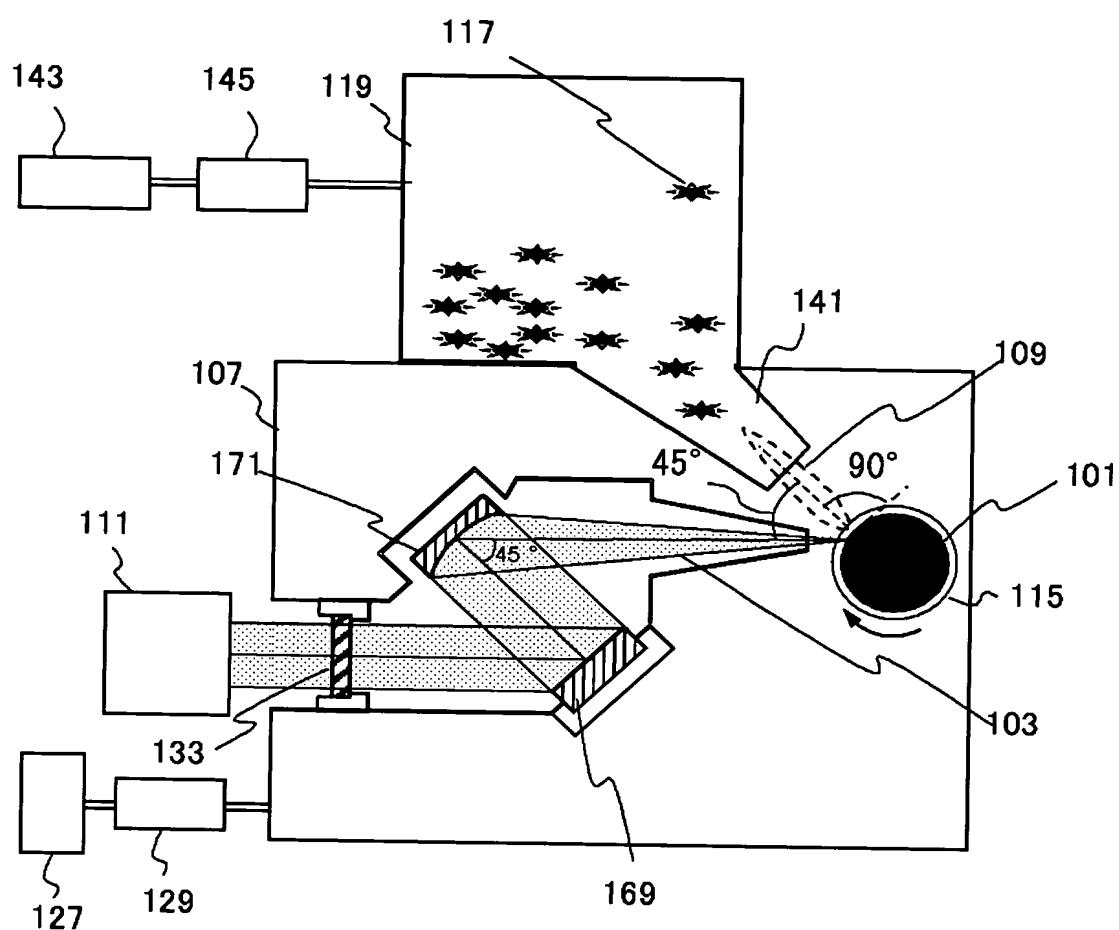
[図7]

177

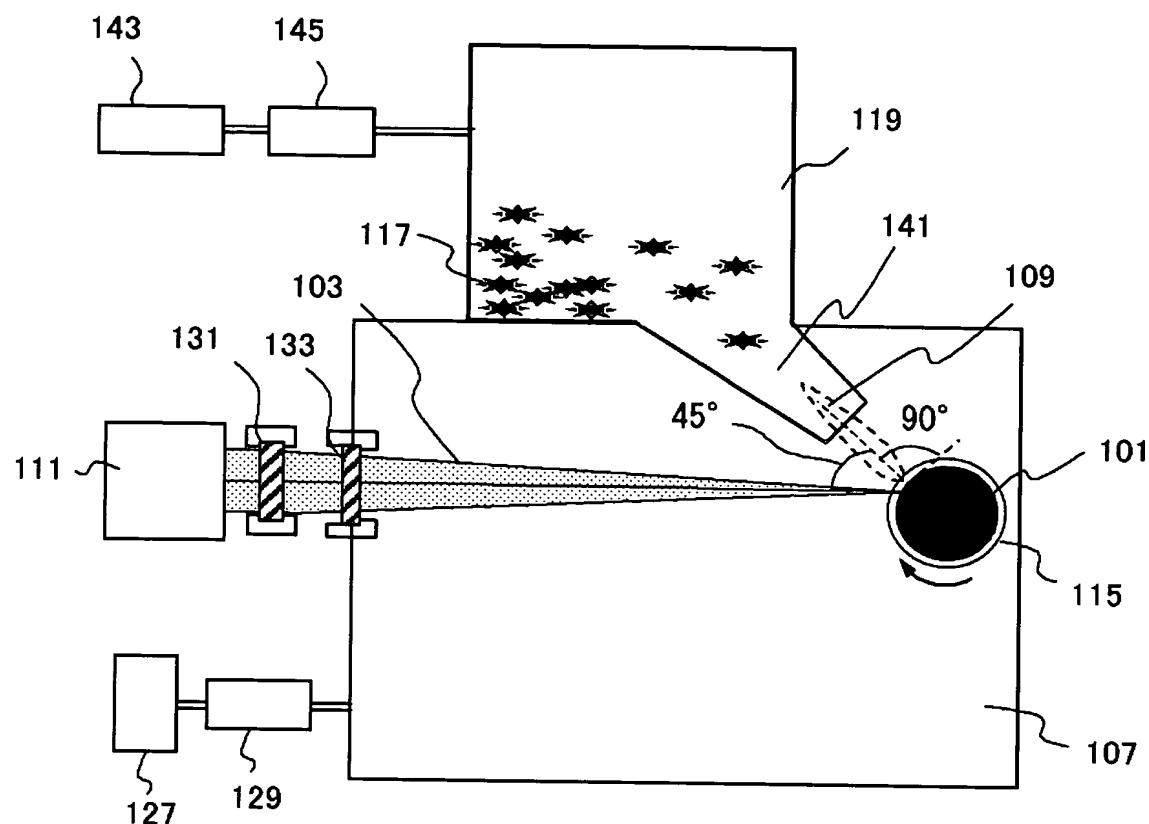
[図8]



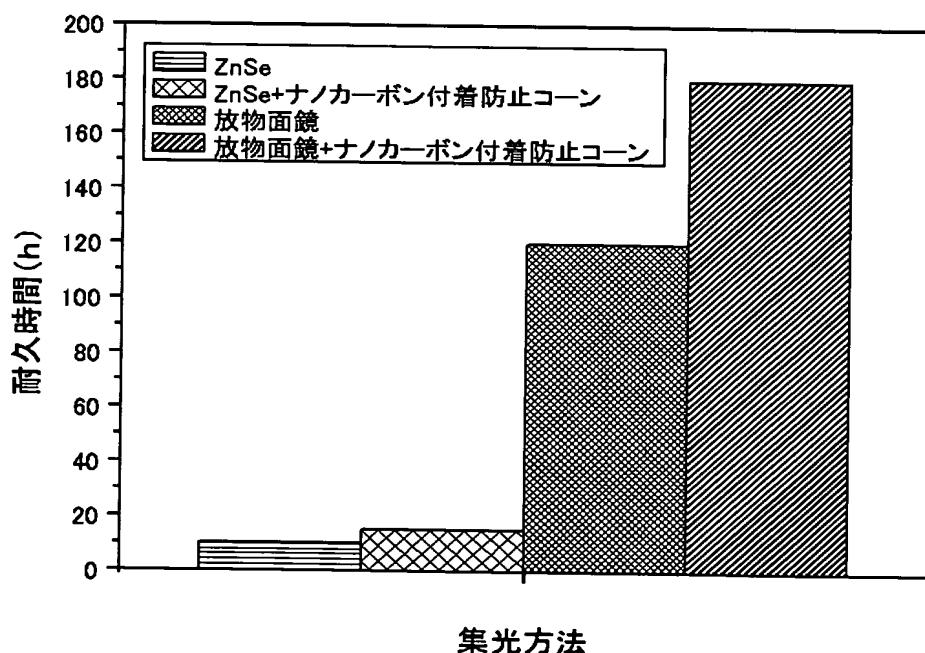
[図9]



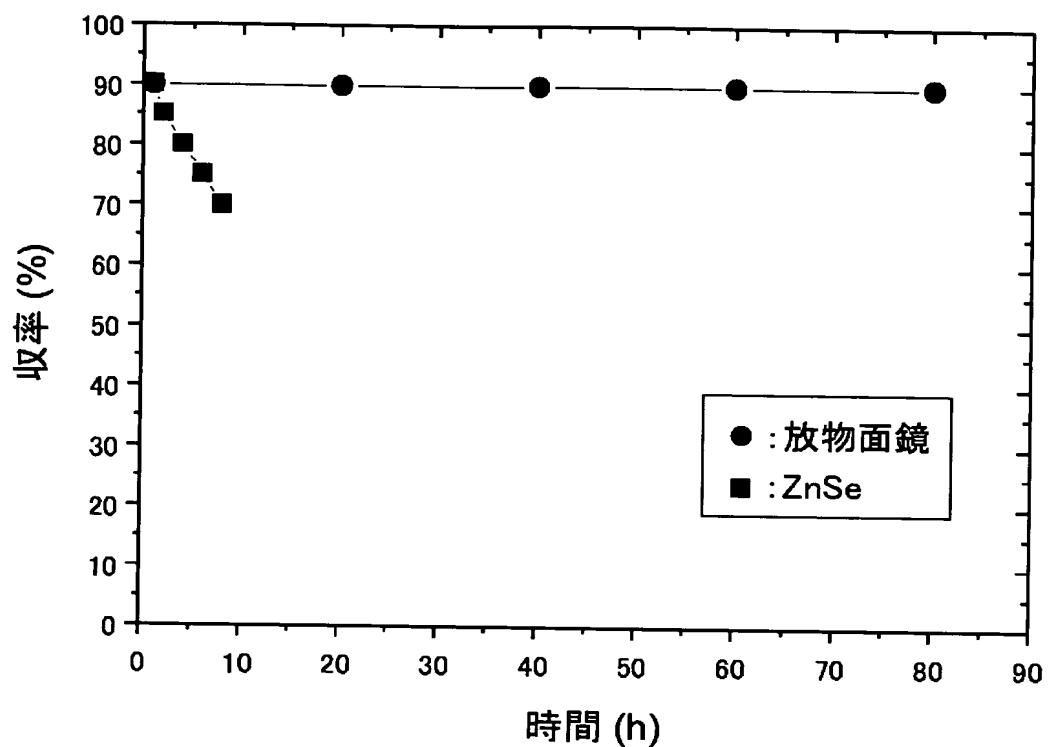
[図10]



[図11]



[図12]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/008743

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl' C01B31/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl' C01B31/02, C01B31/04, C23C14/00-14/58Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2004 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2004Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
JOIS, SCIENCE DIRECT

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	S. IIJIMA et al., Naono-aggregates of single-walled graphitic carbon nano-horns, CHEM.PHYS.LETT. 1999, Vol.309, pages 165 to 170	1-9
Y	JP 2001-064004 A (Japan Science and Technology Corp.), 13 March, 2001 (13.03.01), Full text (Family: none)	1-9
Y	JP 61-291966 A (Director General, Agency of Industrial Science and Technology), 22 December, 1986 (22.12.86), Claims; Figs. 1, 2 (Family: none)	1-9

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

- * Special categories of cited documents:
- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
15 September, 2004 (15.09.04)Date of mailing of the international search report
28 September, 2004 (28.09.04)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/008743

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 06-002115 A (Mitsubishi Electric Corp.), 11 January, 1994 (11.01.94), Claims; Fig. 1 (Family: none)	1
A	JP 62-299801 A (Mitsubishi Electric Corp.), 26 December, 1987 (26.12.87), Claims; Fig. 1 (Family: none)	1
A	JP 2003-020215 A (Japan Science and Technology Corp.), 24 January, 2003 (24.01.03), Full text & WO 03/004411 A1	1-9
A	F.KOKAI et al., Growth dynamics of single-wall carbon nanotubes and nanohorn aggregates by CO ₂ laser vaporization at room temperature, APPLIED SURFACE SCIENCE, 2002, Vols. 197 to 198, pages 650 to 655	1-9
A	JP 10-273308 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 13 October, 1998 (13.10.98), Fig. 1 (Family: none)	1-9
A	WO 97/09272 A (WILLIAM MARSH RICE UNIVERSITY), 13 March, 1997 (13.03.97), Full text & US 6183714 B1 & EP 854839 A & JP 2001-520615 A	1-9

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP2004/008743

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' C01B31/02

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' C01B31/02, C01B31/04, C23C14/00-14/58

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2004年
日本国登録実用新案公報	1994-2004年
日本国実用新案登録公報	1996-2004年

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

JOIS, SCIENCE DIRECT

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	S. IIJIMA et al., Naono-aggregates of single-walled graphitic carbon nano-horns, CHEM. PHYS. LETT. 1999, Vol. 309, p. 165-170	1-9
Y	JP 2001-064004 A (科学技術振興事業団) 2001.03.13, 全文 (ファミリーなし)	1-9
Y	JP 61-291966 A (工業技術院長) 1986.12.22, 特許請求の範囲, 図1, 図2 (ファミリーなし)	1-9

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す)
- 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

15.09.2004

国際調査報告の発送日 28.9.2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官(権限のある職員)

吉田 直裕

4G 3028

電話番号 03-3581-1101 内線 3416

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP2004/008743

C(続き)	関連すると認められる文献	関連する請求の範囲の番号
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	
Y	JP 06-002115 A (三菱電機株式会社) 1994.01.11, 特許請求の範囲、図1 (ファミリーなし)	1
A	JP 62-299801 A (三菱電機株式会社) 1987.12.26, 特許請求の範囲、図1 (ファミリーなし)	i
A	JP 2003-020215 A (科学技術振興事業団) 2003.01.24, 全文 & WO 03/004411 A1	1-9
A	F.KOKAI et al., Growth dynamics of single-wall carbon nanotubes and nanohorn aggregates by CO ₂ laser vaporization at room temperature, APPLIED SURFACE SCIENCE, 2002, Vol. 197-198, p. 650-655	1-9
A	JP 10-273308 A (三菱化学株式会社) 1998.10.13, 図1 (ファミリーなし)	1-9
A	WO 97/09272 A (WILLIAM MARSH RICE UNIVERSITY) 1997.03.13, 全文 & US 6183714 B1, & EP 854839 A, & JP 2001-520615 A	1-9